

16 JUL 2004

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局(43) 国際公開日  
2003年10月30日 (30.10.2003)

PCT

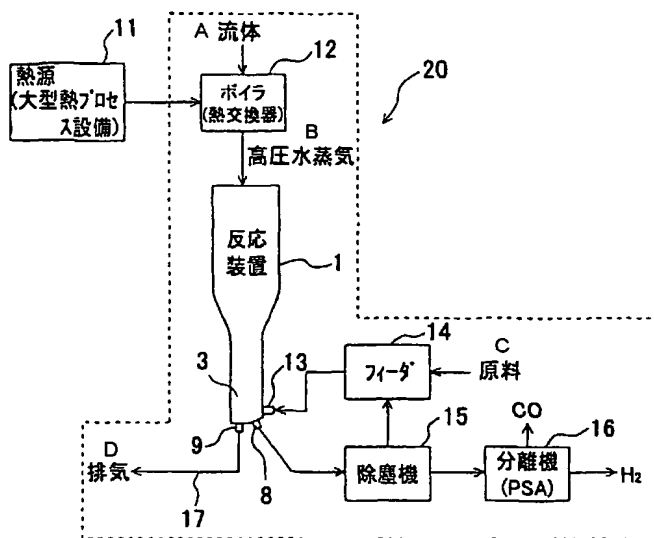
(10) 国際公開番号  
WO 03/089369 A1

- (51) 国際特許分類: C01B 3/02, B01J 3/08, C08J 11/10, C10J 3/00  
特願2002-150658 2002年5月24日 (24.05.2002) JP  
特願2002-212330 2002年7月22日 (22.07.2002) JP  
特願2002-376249
- (21) 国際出願番号: PCT/JP03/03940 2002年12月26日 (26.12.2002) JP
- (22) 国際出願日: 2003年3月28日 (28.03.2003)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ: 特願2002-118427 2002年4月19日 (19.04.2002) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): JFE エンジニアリング株式会社 (JFE ENGINEERING CORPORATION) [JP/JP]; 〒100-0005 東京都千代田区丸の内一丁目1番2号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および  
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 鈴木 実 (SUZUKI, Minoru) [JP/JP]; 〒230-8611 横浜市鶴見区末広町二丁目1番地 JFEエンジニアリング

[続葉有]

(54) Title: HYDROGEN PRODUCTION METHOD, HYDROGEN PRODUCTION APPARATUS, HYDROGEN SUPPLY FACILITIES, AND METHOD FOR GENERATING ELECTRIC POWER

(54) 発明の名称: 水素製造方法、水素製造装置、水素供給施設、及び発電方法



- A...FLUID  
B...HIGH PRESSURE STEAM  
C...RAW MATERIAL  
D...EXHAUST GAS  
1...REACTION DEVICE  
11...HEAT SOURCE (LARGE HEAT PROCESS FACILITIES)  
12...BOILER (HEAT EXCHANGER)  
14...FEEDER  
15...DUST REMOVER  
16...SEPARATOR (PSA)

(57) Abstract: A hydrogen production method which comprises a step of heating a fluid by the heat exchange with a heat source to thereby convert it to a high pressure gas having a pressure of five times or more the pressure in a hydrogen production device before reaction, a step of instantaneously opening the inside of the high pressure gas to the inside of the hydrogen production device, to thereby generate a shock wave, supplying a raw material to the inside of the hydrogen production device before the generation of the shock wave, and a step of impact-compressing the raw material by the shock wave generated to heat the material, thereby producing hydrogen; and, a hydrogen production apparatus and hydrogen supply facilities for practicing the method. The method allows the production of hydrogen, which has conventionally required a high temperature heat source, to be performed by the utilization of the waste heat of relatively low temperature at a low cost, and easy operation in start-up and shut-down, and thus allows the suppression of the operation cost and the equipment cost of a hydrogen production apparatus.

(57) 要約: 高温が必要な水素製造を各種熱プロセスから排出される比較的低温の廃熱エネルギーを利用して安価に実現でき、装置の立ち上げ立ち下げが容易で運転費・設備費を抑えられる水素製造方法、並びに水素製造装置、その水素供給施設を提供する。その解決手段として、熱源との熱交換により流体を加熱し、反応前の水素製造装置内の圧力に対して5倍以上の圧力の高圧ガスとする工程と、高圧ガス内を瞬間的に水素製造装置内に開放

して衝撃波を発生させる工程と、衝撃波を発生させる前に原料を水素製造装置内に供給する工程と、発生させた衝撃波により原料を衝撃圧

[続葉有]

WO 03/089369 A1



株式会社 知的財産室内 Kanagawa (JP). 岩崎 克博 (IWASAKI,Katsuhiko) [JP/JP]; 〒230-8611 横浜市 鶴見区 末広町二丁目 1 番地 JFEエンジニアリング株式会社 知的財産室内 Kanagawa (JP). 中山 剛 (NAKAYAMA,Takashi) [JP/JP]; 〒230-8611 横浜市 鶴見区 末広町二丁目 1 番地 JFEエンジニアリング株式会社 知的財産室内 Kanagawa (JP).

(81) 指定国 (国内): CN, US.

(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

## 明細書

### 水素製造方法、水素製造装置、水素供給施設、及び 発電方法

#### 技術分野

本発明は、例えば製鉄所、ごみ焼却施設等の各種熱プロセスから排出される比較的低温の廃熱エネルギーを用いて高圧ガスを生成し、高圧ガスを瞬間的に開放して衝撃波を発生させてその衝撃波により例えば廃棄物などの原料を化学反応させて水素等を生成する水素および水素含有燃料ガスの製造方法、並びに水素製造装置、水素供給施設、及び水素含有ガスを燃焼させる発電方法に関するものである。

#### 背景技術

廃棄物である原料を水蒸気で改質して水素を得る方法の一例として、加熱炉式で所定の水素分離膜を有する隔壁で仕切られた二重管型水蒸気改質反応器を用い、二重管の一方の管内に触媒を充填して原料としての炭化水素および水蒸気を供給して改質反応させ、一方の管内から排出されるガスを冷却してガス相と水分からなる液相とに気液相分離してそれぞれを取り出すとともに、生成水素を水素分離膜を介して他方の管内に連続的に流出させて取り出し、同時に生成水素の一部を酸素とともに加熱炉に供給し燃焼させて改質反応器に熱を与える環境調和型水素製造方法がある（例えば、特開 2 0 0 0 - 2 7 2 9 0 4 号公報（第 3 ～ 4 頁、図 1）。以下「従来技術 1」という）。

また、天然ガスのスチームリフォーマ法を用いるものにあつては、原料として天然ガス、プロパンガス等の炭化水素と水蒸気との混合体を反応器内で高温状態の改質触媒に接触させることにより、水素、一酸化炭素等を含有した水素含有ガスたる改質ガスを得て、この改質ガスから水素を分離して得る方法である

(例えば、特開昭62-197301号公報(第1～4頁、図1、以下「従来技術2」という)。

上記のような従来技術1は、高温の水蒸気改質反応を進めるために、原料と水蒸気との混合体である反応物質を少なくとも450℃以上の高温に加熱しなければならず、そのために少なくとも620℃以上、概ね800℃前後の恒常的な熱源が必要であり、その熱源を得るためには燃料が必要であった。これにより、燃料消費が省けないばかりでなく、燃料の燃焼により炭酸ガスが発生するという問題があった。また、反応器は、恒常的な高温場を維持する必要があることから、少なくとも内面を高価な耐火物製とする必要があり、設備費が高くなってしまいうという問題もあった。

従来技術2は、水素を得る反応の前に反応器内を予め高温状態としなければならないため、装置の立ち上げ工程や立ち下げ工程等で、エネルギーロスが大きくなってしまい、装置の運転費が高くなってしまいうという問題があった。また、時間的ロスも大きくなってしまいうため、一旦装置を立ち上げて反応器内を高温状態とした後は長時間連続して水素製造を行うことになり、水素の供給要求が出された時だけ装置を簡単に稼動することができず、小規模生産あるいは所望時の短時間生産を行うことができないという問題があった。さらに、装置の立ち上げから立ち下げまでの間の長時間に亘り、反応器内が高温状態に維持されるため、耐火物を多用して装置を構成する必要があり、設備費が高くなってしまいうという問題もあった。また、原料として天然ガス、プロパンガスが必要であるため、この点でも装置の運転費が高くなってしまいうという問題があった。そして、水素を得る過程において、水素と同等量以上の二酸化炭素が排出されてしまいうため、近年世界的に問題化されている地球温暖化を防止する上で好ましくない。

## 発明の開示

本発明は、上記のような課題を解決するためになされたもので、高温が必要な水素製造を、各種熱プロセスから排出される比較的低温の廃熱エネルギーを利用し、かつ安価に実現することができるとともに、その水素生成を行う装置の立ち上げおよび立ち下げが容易で、運転費および設備費を抑えることのできる水素製造方法、水素製造装置、および水素供給施設を提供することを目的としたものである。即ち、本発明は、以下を具備する。

### 1. 水素製造方法は、以下からなる：

熱源との熱交換により流体を加熱し、該流体を200℃以上且つ400℃以下の高圧ガスにする工程；

原料を、反応装置内に供給する工程；

高圧ガスを瞬間的に該反応装置内に開放して、衝撃波を発生させる工程；

そして、

該発生させた衝撃波により該原料を衝撃圧縮して加熱することにより、水素を生成する工程。

### 2. 水素製造方法は、以下からなる：

熱源との熱交換により流体を加熱し、該流体を、反応前の反応装置内圧力に対して、5倍以上の圧力を有する高圧ガスにする工程；

原料を、反応装置内に供給する工程；

該高圧ガスを瞬間的に該反応装置内に開放して、衝撃波を発生させる工程

；

該発生させた衝撃波により、該原料を衝撃圧縮して加熱することにより、水素を生成する工程。

3. 水素製造方法は、以下からなる：

熱源との熱交換により低沸点流体を加熱し、該低沸点流体を高圧ガスにする工程；

原料を反応室内に供給する工程；

該高圧ガスを瞬間的に該反応室内に開放することにより、衝撃波を生成する工程；

該生成した衝撃波により、該原料を衝撃圧縮して加熱することにより、水素を生成する工程。

4. 上記の 1、2、3 のいずれか一つに記載の水素製造方法は、更に、該水素と他の生成物とを分離する水素分離工程、を含む。

5. 上記の 1、2、3、のいずれか一つに記載の水素製造方法において、該熱源は、火力発電所、廃棄物焼却施設、廃棄物処理施設、製鉄所の製鉄設備、製鉄所の製鋼設備、スクラップ溶解設備、非鉄金属精錬設備、セメント焼成設備、燃烧設備および地熱利用設備に備えられた熱発生源のうち、少なくともいずれか一つである。

6. 上記の 1、2、3、のいずれか一つに記載の水素製造方法において、該熱源は、発生する熱から水蒸気を発生させ、該水蒸気を発電に使用する燃烧設備である。

7. 上記の 1、2、3、のいずれか一つに記載の水素製造方法において、該熱源は、発生する熱から水蒸気を発生させ、該水蒸気を発電に使用する燃烧設備であり、該高圧ガスは余剰水蒸気である。

8. 水素製造装置は、以下からなる：

熱源；

該熱源との熱交換により流体を加熱し、該流体を200℃以上且つ400℃以下の高圧ガスにするための熱交換器；

原料を、該反応装置内に供給するための原料供給装置；

該高圧ガスを瞬間的に開放することにより、衝撃波を発生させ、該衝撃波により該原料を衝撃圧縮して加熱することにより、水素を生成するための反応装置。

9. 水素製造装置は、以下からなる：

熱源；

該熱源との熱交換により流体を加熱し、該流体圧力を、反応前の反応装置内の該流体圧力に対して、5倍以上の圧力を有する高圧ガスにするための熱交換器；

原料を、該反応装置内に供給するための原料供給装置；

該高圧ガスを瞬間的に開放することにより衝撃波を発生させ、該衝撃波により、該原料を衝撃圧縮して加熱することにより、水素を生成するための反応装置。

10. 水素製造装置は、以下からなる：

熱源；

熱交換により低沸点流体を加熱し、該流体を、高圧ガスにするための加熱器；

原料を、反応装置内に供給するための供給装置；

該高圧ガスを瞬間的に開放することにより、衝撃波を生成し、該衝撃波により該原料を衝撃圧縮して加熱することにより、水素を生成するための該反応装置。

11. 上記の8、9、10のいずれかに記載の水素製造装置において、該熱源は、火力発電所、廃棄物焼却施設、廃棄物処理施設、製鉄所の製銑設備、製鉄所の製鋼設備、スクラップ溶解設備、非鉄金属精錬設備、セメント焼成設備、燃焼設備および地熱利用設備に備えられた熱発生源の内、少なくともいずれか一つである。

12. 上記の8、9、10のいずれかに記載の水素製造装置は、更に、該水素と他の生成物とを分離する分離装置を、含む。

13. 上記の8、9、10のいずれか一つに記載の水素製造装置において、該熱源は、発生する熱から水蒸気を発生させ、該水蒸気を発電に使用する燃焼設備である。

14. 上記の8、9、10のいずれか一つに記載の水素製造装置において、該熱源は、発生する熱から水蒸気を発生させ、該水蒸気を発電に使用する燃焼設備であり、該高圧ガスは、余剰水蒸気である。

15. 水素供給施設は、以下を含む：

熱源；

該熱源との熱交換により、200℃以上且つ400℃以下の水蒸気を生成するための水蒸気生成装置；

原料を反応装置内に供給するための原料供給装置；

該水蒸気を瞬間的に開放して衝撃波を発生させ、該衝撃波により該原料を衝撃圧縮して加熱することにより、水素を生成するための該反応装置；

該反応装置内で生成された該水素を含む生成物から、該水素を分離するための分離装置；

該分離された該水素を供給するための水素供給装置。



16. 水素供給施設は、以下を含む：

熱源；

該熱源との熱交換により、反応前の反応装置内の圧力に対して5倍以上の圧力の水蒸気を生成する水蒸気生成装置；

原料を該反応装置内に供給するための原料供給装置；

該水蒸気を瞬間的に開放して衝撃波を発生させ、該衝撃波により、該原料を衝撃圧縮して加熱することにより、水素を生成するための反応装置；

該反応装置内で生成された該水素を含む生成物から該水素を分離する分離装置；

分離された該水素を供給するための水素供給装置。

17. 上記の15、16のいずれか一つに記載の水素供給施設において、該熱源は、発生する熱から水蒸気を発生させ、該水蒸気を発電に使用する燃焼設備であり、水素供給要求があったときに、該水蒸気の少なくとも一部を水素生成に用いる。

18. 水素含有ガスを燃焼させる発電方法は、以下からなる：

熱源との熱交換により流体を加熱し、該流体を200℃以上且つ400℃以下の高圧ガスにする工程；

原料を、反応装置内に供給する工程；

高圧ガスを瞬間的に該反応装置内に開放して、衝撃波を発生させる工程

；

該発生させた衝撃波により該原料を衝撃圧縮して、加熱することにより水素含有ガスを生成する工程；そして、

該水素含有ガスをガスタービンで燃焼させて、発電する工程。

19. 水素含有ガスを燃焼させる発電方法は、以下からなる：

熱源との熱交換により流体を加熱し、該流体を反応前の反応装置内圧力に対して、5倍以上の圧力を有する高圧ガスにする工程；

原料を、反応装置内に供給する工程；

高圧ガスを瞬間的に該反応装置内に開放して、衝撃波を発生させる工程

；

該発生させた衝撃波により該原料を衝撃圧縮して、加熱することにより水素含有ガスを生成する工程；そして、

該水素含有ガスをガスタービンで燃焼させて、発電する工程。

20. 上記の18、19のいずれか一つに記載の水素含有ガスを燃焼する発電方法は、更に、以下を含む。

該水素含有ガスを貯蔵する工程、及び、

電力需要に合わせて発電量を調整する工程。

21. 水素製造方法は、以下からなる：

炭化水素若しくは炭素を含有する反応性粒子を、反応器の圧縮室内に供給するための、反応性粒子供給工程；

水蒸気を該圧縮室内に供給するための、水蒸気供給工程；

該圧縮室内に供給された該反応性粒子と該水蒸気により混合された混合体を、加熱し、高温にすることにより、該反応性粒子と該水蒸気を反応させて、水素含有ガスを生成させるための反応工程であって、ここで、該反応工程は、高圧ガスを噴出することにより生じた衝撃波により該圧縮室内の該混合体を衝撃圧縮することにより、且つ、該混合体を高温に加熱することにより、該反応性粒子と該水蒸気を反応させる工程を含む；

該反応工程で生成された該水素含有ガスから水素を分離する分離工程。

22. 上記の21に従う方法は、更に、高圧ガスとして該水蒸気を用い、該水蒸気を、該圧縮室に供給する工程を含む。

23. 上記の21または22に従う方法において、該反応性粒子は、廃プラスチック粉、溶融プラスチックの噴霧粒子、微粉炭、及び、粉コークスの内、いずれか一つである。

24. 炭化水素若しくは炭素を含有する反応性粒子と水蒸気との混合体を加熱し高温にすることにより、該反応性粒子と該水蒸気を反応させ、水素含有ガスを生成させ、該水素含有ガスから水素を分離するための水素製造装置は、以下を含む；

該反応性粒子及び該水蒸気の該混合体を衝撃圧縮するために該混合体を収容する圧縮室；

該圧縮室内に該反応性粒子を供給するための反応性粒子供給手段；

該圧縮室内に該水蒸気を供給するための水蒸気供給手段；

該圧縮室内に供給された、該反応性粒子及び該水蒸気を混合して成る該混合体を、衝撃圧縮するための衝撃波を発生させる衝撃波発生手段、ここで、該衝撃波発生手段は、以下を有する、

高圧ガスを収容し、該圧縮室に連通するためのガス収容室；及び、

該ガス収容室と該圧縮室とを連通或いは遮断させるための開閉手段；

ここで、該開閉手段により該ガス収容室内の該高圧ガスが瞬間的に噴出することにより発生する衝撃波を、該圧縮室内に伝播させ、該圧縮室内の該混合体を衝撃圧縮して高温に加熱することにより、該混合体中の該反応性粒子と該水蒸気が反応させ、該水素含有ガスが生成する。

25. 上記の24に記載の水素製造装置は、更に、以下を含む：

回転可能な回転体において、周方向の複数位置に位置し、軸線方向に延

び、且つ、該回転体の軸線方向の少なくとも一方の端面に開口して形成される圧縮室；

該圧縮室の開口と同一半径方向位置に位置し、該回転体の回転により該圧縮室の開口と該回転体の端面とに交互に断続的に対向することにより、ガス収容室に連通するガス噴射口、を有する開閉手段；

該開閉手段においては、該回転体の端面と該ガス噴射口を対向させることにより、該ガス噴射口を閉じる遮断状態にし、該圧縮室の開口と該ガス噴射口を対向させることにより、該ガス噴射口を開放して連通状態にする；

該水素製造装置においては、該遮断状態と該連通状態が交互に繰り返されることにより、高圧ガスによる衝撃波が、複数の圧縮室に断続的に伝播する。

26. 上記の24または25に記載の水素製造装置は、更に、該衝撃波発生手段が、廃熱ボイラにより生成された該水蒸気を、該ガス収容室内に、該高圧ガスとして収容するための水蒸気供給手段を有する。

27. 上記の24、25、26のいずれか一つに記載の水素製造装置は、更に、該圧縮室の下流に配設された、ラバールノズル、ガスタンク、フィルタ装置及び水素分離装置を含む。

#### 図面の簡単な説明

第1図は、本発明の実施の形態1に係る水素製造装置の構成ブロック図である。

第2図は、第1図の水素製造装置の断面図である。

第3図は、本発明の実施の形態1に係る水素製造装置のタイミングチャートである。

第4図は、本発明の実施の形態2に係る水素製造装置の構成ブロック図である。

第5図は、本発明の実施の形態4に係る水素製造設備の構成ブロック図である。

第6図は、本発明の実施の形態5に係る水素含有ガスを燃焼させる発電設備の構成ブロック図である。

第7図は、本発明の実施形態6にかかる水素製造装置の概略構成を示す図である。

第8図(a)は、第7図の水素製造装置に備えられた圧縮室の概略構成を示す図である。

第8図(b)は、第8図(a)におけるI-I線横断面図である。

第9図は、本発明の一実施形態における水素製造のための衝撃波発生装置の断面図である。

第10図は、第9図の衝撃波発生装置を水素製造装置と接続した構成図である。

第11図は、第10図装置の作動順を示す図である。

第12図(A)は、第11図装置の作動順に衝撃波発生装置の動きを示す図である。

第12図(B)は、第11図装置の作動順に衝撃波発生装置の動きを示す、その他の図である。

図12(C)は、第11図装置の作動順に衝撃波発生装置の動きを示す、その他の図である。

第12図(D)は、第11図装置の作動順に衝撃波発生装置の動きを示す、その他の図である。

## 発明を実施するための最良の形態

### 実施の形態1

図1は本発明の実施の形態1に係る水素製造装置の構成ブロック図、図2はその反応装置の断面図である。図において、1は炭化水素もしくは炭素を含む反応性粒子と水蒸気を高温下で反応させ水素を生成する水素生成反応を実現する水素製造装置20の反応装置で、上端が大径、下端が小径で、中間部に上端から下端へ向け通路断面積が小さくなる収束部2Aを有する収束管2を備えており、

収束管 2 の下流側の空間が反応室としての圧縮室 3 を形成している。この収束管 2 に、高圧水蒸気が瞬間的に開放されることにより、衝撃波が発生し、さらに収束部 2 A 内では、衝撃波が収束されて高温高圧の収束衝撃波が得られる。そして、圧縮室 3 内で後述する反応性粒子と水蒸気との混合体を収束衝撃波によって衝撃圧縮して高温に加熱することにより、混合体中の反応性粒子と水蒸気とが反応して水素含有ガスを生成する。

また、反応装置 1 の圧縮室 3 の下端部には、生成ガス取出口 6 および排気口 7 が設けられており、その先端部には所定時に開放される制御弁 8, 9 が設けられている。さらに、生成ガス取出口 6 および排気口 7 よりも若干上方の位置に、反応性粒子を収束管 2 内に供給するための反応性粒子供給口 10 が設けられており、その先端部には所定時に開放される制御弁 13 が設けられている。

11 は例えばごみ焼却炉等の大型熱プロセス設備からなる熱源、12 は熱源 11 から発生する排ガスの廃熱を回収して流体（例えば水）を熱交換して加熱し高圧ガスである高圧水蒸気を生成する熱交換器であるボイラで、反応装置 1 の上流側に接続されており、反応装置 1 の収束管 2 内にボイラ 12 の高圧水蒸気を供給する。

そして、熱源 11 は、火力発電所、廃棄物焼却施設、廃棄物処理施設、製鉄所の製鉄設備、製鉄所の製鋼設備、スクラップ溶解設備、非鉄金属精錬設備、セメント焼成設備、燃焼設備および地熱利用設備などの熱発生源であり、これらの熱発生源の燃焼装置、焼却炉、高炉、転炉、石灰燃成、コークス炉、焼結機、キュプラなどから発生する排ガスの廃熱を利用して熱交換器であるボイラ 12 により水（流体）を加熱し、高圧水蒸気を生成する。

14 は炭化水素もしくは炭素を含有する原料を他の物質と分離し破碎して粉碎し微粒子状の反応性粒子とするとともに、その反応性粒子を反応装置 1 に供給するフィーダで、反応装置 1 の反応性粒子供給口 10 の上流側に接続されており、微粒子化した反応性粒子を所定時に制御弁 13 を介して供給する。

15 は反応装置 1 の生成ガス取出口 6 の下流側に接続され、反応装置 1

で生成された水素含有ガスから未反応の反応性粒子、ハロゲン化物および硫黄化合物などの不純物等を除去する除塵機で、除去された未反応の反応性粒子を帰還させて再利用するためにフィード14にも接続されている。16は除塵機15の下流側に接続され、除塵機15からの水素含有ガスを水素ガスとCOガスとに分離してそれぞれ取り出すための分離機で、例えば圧力振動吸着装置(PSA)が用いられる。なお、水素の分離は圧力振動吸着法に限らず膜分離、深冷分離、水素吸蔵体に水素を直接吸蔵させる方法など、他の方法を用いてもよい。17は制御弁9を介して排気口7に接続された排気管で、反応装置1での反応後に圧縮室3内に残留している水蒸気が排出される。

ここで、高圧水蒸気の温度は、200℃以上で400℃以下の範囲が好ましい。高圧水蒸気が200℃未満では、高圧水蒸気を瞬間的に開放して発生させる衝撃波の安定性が低く、また衝撃波によって生成される高温高圧場の到達温度が低いため、反応効率が低くなる。また、400℃を越える高圧水蒸気を得るには、熱源11のごみ焼却炉等から発生する比較的低温の排ガスの廃熱から得るのが困難となって、専用の熱源が必要になり、排ガスの廃熱の有効利用にはならない。さらに、300℃以上では反応効率がより高くなる。よって、300℃以上で400℃以下の高圧水蒸気とすることが好ましい。また、熱源11は50℃以上で600℃以下の温熱を提供する熱プロセスであることが好ましい。50℃未満の温熱では得られる高圧水蒸気は圧力が低く不十分であり、600℃を超える温熱は、高圧水蒸気が400℃を超えてしまうと同時に、それを得るために設備が大型になりプロセスも複雑になってしまう。よって、熱源11は50℃以上で600℃以下の温熱を提供することにより、200℃以上で400℃以下の高圧水蒸気を得られる。

また、反応装置1に供給される高圧水蒸気の圧力は、反応前の反応装置1内の圧力に対して5倍以上の圧力が好ましい。高圧水蒸気を瞬間的に反応装置1の反応室内(収束管2内)に開放することにより衝撃波を発生させるが、その際高圧水蒸気と反応前の反応装置1内の圧力との圧力比が5以上であれば、反応

性粒子と水蒸気を衝撃圧縮して高温に加熱して反応させるのに必要な衝撃波を発生させることができる。さらに、圧力比が10以上の高圧水蒸気を用いることにより、衝撃波の安定性と衝撃波による高温場（衝撃温度）の到達温度を向上させることができるので、反応性粒子と水蒸気との反応を効率的に進めることができ、より好ましい。さらに、圧力比を20以上または40以上の高圧水蒸気を用いることにより、衝撃高温の到達温度をさらに向上させることができ、反応効率を向上させることができる。

また、高圧水蒸気と反応前の反応装置1内の圧力との圧力比が5以上の高圧水蒸気を瞬間的に開放して発生した衝撃波を、通路断面積が衝撃波の進行方向に沿って次第に小さくなっている収束部2Aを伝播させ、複数の衝撃波を干渉させて収束衝撃波を発生させることにより、衝撃高温の到達温度をさらに高くすることができる。収束部2Aの下流側の通路断面積の上流側の通路断面積に対する比（収縮比）が小さいほど衝撃波の収束密度が高くなり、衝撃温度の到達温度を高くすることができる。

また、反応前の反応装置1内の圧力を大気圧で操作することが、反応装置1（収束管2）への周囲からのガス等の混入を防ぐシール対策として容易である。反応装置1内の圧力を大気圧とした場合、高圧水蒸気と反応前の反応装置1内との圧力比を10から40とするには、高圧水蒸気の圧力を10気圧から40気圧にすればよく、その温度が200℃以上で400℃以下である高圧水蒸気を用いればよい。この温度域の高圧水蒸気は、廃棄物焼却炉の廃熱ボイラ等の廃熱回収ボイラで生成される水蒸気に相当し、エネルギーの有効利用ができる。また、反応装置1内を反応前に減圧しておくことにより、高圧水蒸気の圧力をそれほど高くしなくても圧力比を高くすることができる。そして、反応装置1内を減圧するには、減圧用ブロワや真空ポンプを用いる。

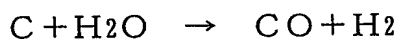
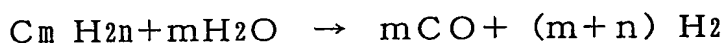
このように構成された実施の形態1に係る水素製造装置20を用いて水素ガスが次の要領で製造される。



1) まず、制御弁 13 が開放されると、反応性粒子供給口 10 から反応性粒子がフィーダ 14 を介して反応装置 1 の圧縮室 3 内に供給され、その後制御弁 13 が閉じられると、反応性粒子の供給が止まる。このとき、ガス取出口 6 および排気口 7 の制御弁 8, 9 は閉じている (図 3 のタイミングチャート (1) 参照)。

2) 次に、ボイラ 12 から的高圧水蒸気が、例えば 1 ～数 ms の極めて短い時間、瞬間的に収束管 2 内に噴射されると、瞬間的に開放された高圧水蒸気は衝撃波を発生し、その衝撃波は収束管 2 の下端に向けて進行する。そして、進行する際に、収束管 2 の収束部 2A で合流収束されて収束衝撃波となる (図 3 のタイミングチャート (2) 参照)。ついで、収束衝撃波は、圧縮室 3 に進行し、圧縮室 3 内に供給された反応性粒子とともに水蒸気を急激圧縮して昇温して、例えば 3000 K に達すると、その超高温によって反応性粒子が高圧水蒸気と瞬時に反応して水素ガスおよび CO ガスを含む水素含有ガスを生成する。

この炭化水素もしくは炭素を含む反応性粒子と水蒸気とが反応して水素と CO を生成する反応式は、次の通りである。



3) ついで、生成ガス取出口 6 の制御弁 8 が開くと、反応装置 1 (圧縮室 3) 内の水素含有ガスが除塵機 15 に送られ、除塵機 15 にて未反応の反応性粒子および不純物等が除去される (図 3 のタイミングチャート (3) 参照)。このとき、未反応の反応性粒子は再利用のためにフィーダ 14 に送られる。そして、さらに分離機 16 にて水素ガスと CO ガスに分離され、それぞれ取り出される。

4) 一方、反応装置 1 では、水素含有ガスが除塵機 15 に送られると、ガス取出口 6 の制御弁 8 は閉じられるとともに排気口 7 の制御弁 9 が開き、圧縮室 3 内の水蒸気等が残留ガスとして排気管 17 を通って外部に排気される。そして、また次の水素ガス生成に備える (図 3 のタイミングチャート (4) 参照)。

このように、水素生成反応を、例えばごみ焼却炉等の大型熱プロセス設備である熱源 11 から発生する排ガスの廃熱を利用して 200℃ 以上で 400℃ 以下

の高圧水蒸気を発生させ、この高圧水蒸気を反応装置 1 に瞬間的に噴射させて衝撃波を発生させ、さらに収束させることによって収束衝撃波を生成し、この収束衝撃波によって水蒸気と反応性粒子とを高温に加熱して反応させるようにし、この反応により水素の製造を実現するようにしたので、これまで廃棄されていた低温エネルギーを有効利用できるとともに、収束衝撃波を簡単に生成してその収束衝撃波を用いて瞬時に高温場を形成することができるため、装置の立ち上げおよび立ち下げを容易に行うことができ、水素の供給要求が出されたときだけ水素生成反応を起こすことができる水素製造方法およびその装置を得ることができる。

また、反応装置 1 は基本的にバッチ処理を繰り返して水素等の製造を行うので、装置の立ち上げおよび立ち下げを迅速に行うことができ、分離機 16 も基本的にバッチ式水素分離の繰り返しを行うので、熱源の変動に対してサイクルタイムを変更するなどにより瞬時の対応を取ることができる。よって、水素の供給要求があった場合に、簡単にかつ直ちに供給することができ、高コストな水素貯蔵設備等を特に設けることなく対応することができる。これにより、安価に水素を製造することができる水素製造方法およびその装置を得ることができる。

なお、この実施の形態 1 では、原料および圧縮室 3 を予め予熱していてもよい。この場合、従来技術 2 で説明したスチームリフォーマ法のように 600℃ 以上に加熱する必要はなく 200℃ 以上に予熱すればよい。そして、予め予熱をすると、圧縮室 3 内での反応効率を向上させることができるとともに、使用蒸気量を低減させることができる。

また、上述の実施の形態 1 では、フィーダ 14 により反応装置 1 内に反応性粒子を供給する場合を示したが、供給する前に反応性粒子に含まれる不純物、例えばハロゲン化物、硫黄化合物、異物、反応に関与しないあるいは阻害する要因となる種々の物質・化合物等を除去するようにしてもよい。これにより、除塵機 15 での不純物の除去が容易になるとともに、反応装置 1 内で生成される水素含有ガスを不純物の少ないものとして生成することができる。

また、反応装置 1 で水素ガスと共に生成される CO ガスを、水素ガスと

分離した後、その一部を反応装置 1 に供給することにより、水蒸気と反応させて、水素を生成させる原料として用いることができる。これにより、微粉炭などの反応性粒子の供給を節約することができる。

### 実施の形態 2.

図 4 は本発明の実施の形態 2 に係る水素製造装置の構成ブロック図で、この実施の形態 2 は、実施の形態 1 に係る水素製造装置 20 において、熱源 11 から発生する排ガスの廃熱を回収して流体（例えば水）を熱交換して加熱し高圧水蒸気を生成する熱交換器であるボイラ 12 に代えて、熱源 11 から発生する排ガスの廃熱を回収して低沸点流体を熱交換して加熱し高圧ガスを生成する加熱器 12A としたものである。

そして、低沸点流体は、水より沸点の低い流体であり、LNG、LPG、液化炭酸ガス、アンモニア、DME（ジメチルエーテル）、アルコール類、エーテル類などであり、この低沸点流体は、そのものが化学反応（水素製造）の原料になる場合もある。

このように構成したことにより、実施の形態 1 とほぼ同じ作用および効果が得られるとともに、水蒸気を高圧ガスとするより、低温でまたは少ないエネルギーで低沸点流体を高圧ガスとすることができるため、これまで廃棄されていた、あるいは有効な活用方法がなかった低温エネルギーを有効利用することができる。また、生成物である水素の供給要求に応じて装置の立ち上げおよび立ち下げを容易に行うことができる安価な水素製造方法およびその装置を得ることができる。

### 実施の形態 3

本発明の実施の形態 3 は、実施の形態 1 に係る水素製造装置 20 を所定の場所に設置して水素供給施設を形成し、水素製造装置 20 を例えば燃料電池自

動車への水素供給源として活用させるようにしたものである。

このように構成した水素供給施設において、例えば燃料電池自動車が水素を補給のために来ると、直ちに水素製造装置 20 を稼動して水素を生成し、燃料電池自動車のタンク内に水素を供給し充填する。そして、タンクへの水素供給が終了すると水素製造装置 20 の駆動を停止する。また、別の燃料電池自動車が来ると、上述したように水素製造装置 20 を駆動して水素を補給する。

このように、水素製造装置 20 を所定の場所に設置して水素供給施設を形成するようにしたので、水素を需要に応じて簡単にかつ直ちに供給・充填することができ、高コストな水素貯蔵設備等を特に設けることなく対応することができる。これにより、安価に水素を供給することができる水素供給施設を得ることができる。

また、本発明の実施の形態 3 において、熱源が、廃棄物焼却施設の焼却炉等のごとく、発生する熱から水蒸気を発生させ、該水蒸気を上記タービンに供給して、発電する燃焼設備であるようにすると、水素供給要求があったときに、該水蒸気の少なくとも一部を水素製造装置に供給して水素を製造し、供給することが簡単にできる。これにより、安価に水素を供給することが可能な水素供給施設を得ることができる。

なお、上述の実施の形態 3 では、実施の形態 1 に係る水素製造装置 20 を備えた水素供給施設とした場合を示したが、実施の形態 2 に係る水素製造装置 20 を備えた水素供給施設としてもよい。この場合も同様の効果を奏する。

#### 実施の形態 4.

図 5 は本発明の実施の形態 4 に係る水素製造装置の構成ブロック図で、この実施の形態 4 は、実施の形態 1 に係る水素製造装置 20 の熱源 11 である大型熱プロセス設備を廃棄物焼却施設とし、この廃棄物焼却施設からの水蒸気を水素の製造に使用するようにしたもので、廃棄物焼却施設にボイラ 12 が設けられている。

廃棄物焼却施設は、廃棄物を焼却する焼却炉 18 からの廃熱を利用して高圧水蒸気をボイラ 12 で発生させ、発生した高圧水蒸気をボイラ 12 と反応装置 1 との間に設けられた切換弁 5 の切り換えにより、反応装置 1 側または後述する蒸気タービン 19 側に供給する。そして、蒸気タービン 19 側に水蒸気が供給されると、蒸気タービン 19 はその水蒸気によって駆動され、蒸気タービン 19 に接続されたジェネレータ 21 を駆動して発電させる。また、反応装置 1 側に水蒸気が供給されると、反応装置 1 内で衝撃波が発生し、その衝撃波により反応装置 1 内の反応性粒子と水蒸気とが反応して水素含有ガスを生成する。なお、蒸気タービン 19 の駆動に利用された後の水蒸気は温排水施設等に有効利用される。

また、ボイラ 12 は、焼却炉 18 からボイラ 12 を通過した排ガスを大気放出可能な状態に処理する排ガス処理装置 22 が接続されており、排ガス処理装置 22 に接続された誘引ファン 23 によって焼却炉 18 からの排ガスが排ガス処理装置 22 に誘引される。そして、排ガスは排ガス処理装置 22 で大気放出可能な状態に処理され、煙突 24 を通って大気に放出される。

さらに、反応装置 1 で生成され除塵機 15 で未反応の反応性粒子等が除去された水素含有ガスから水素ガスおよび CO ガスを分離する圧力振動吸着装置 (PSA) である分離機 16 は、分離後の水素ガスを必要に応じて、水素需要先へ供給する水素供給装置 25 に接続されているとともに、分離工程後の CO ガスを燃料として帰還させて有効利用するために焼却炉 18 に接続されている。特に、廃棄物の焼却炉 18 の場合は、CO ガスを、廃棄物の燃焼開始領域に供給することにより燃焼が安定化するという効果がある。また、反応装置 1 の排気口 7 から、排気された水蒸気を蒸気タービン 19 の低圧側に供給することにより、エネルギーを有効利用することができる。

このように構成したことにより、実施の形態 1 とほぼ同じ作用および効果が得られ、熱源 11 を廃棄物焼却施設とし、その廃棄物焼却施設のボイラ 12 と反応装置 1 との間に反応装置 1 側または蒸気タービン 19 側に水蒸気の供給を切り換える切換弁 5 を設けて、蒸気タービン 19 側に供給して発電に使用される

水蒸気の少なくとも一部を反応装置 1 側に供給して水素製造に用いることができる。これにより、水素の供給要求がない場合は、水蒸気の全てを発電に使用することができる。また、定常量の発電に必要な定常量の水蒸気量をボイラにて発生させているときには、発生する水蒸気量の全てを発電に使用して、廃棄物焼却量が増加して定常量以上の水蒸気量が発生したときには、余剰の水蒸気を水素製造に用いることができる。

これにより、ボイラ 1 2 から生成される水蒸気の余剰変動分を有効利用することができる。また、反応装置 1 内の反応性粒子と高圧水蒸気とを反応させるのに必要十分な熱を短時間で効率よく供給できるため、装置の立ち上げおよび立ち下げでのエネルギーロスを軽減させることができ、設備費および運転費が安価な水素製造装置 2 0 を得ることができる。また、分離機 1 6 により分離された CO ガスは焼却炉の燃料として有効利用することができる。

なお、上述の実施の形態 4 では、水素の供給要求がある場合に廃熱物焼却施設からの水蒸気の少なくとも一部を反応装置 1 側に供給して水素製造装置 2 0 を駆動する場合を示したが、熱源 1 1 からの発生熱量の増減に対応して水素を安定性よく供給するための生成物貯蔵手段を除塵機 1 5、分離機 1 6 または水素供給装置 2 5 等に設けるようにしてもよい。これにより、熱源 1 1 からの発生熱量を反応装置 1 側または蒸気タービン 1 9 側と随時調整することができ、水素製造装置 2 0 としての経済効果を大きくすることができる。

また、上述の実施の形態 4 では、実施の形態 1 に係る水素製造装置 2 0 の熱源を廃棄物焼却施設とした場合を示したが、実施の形態 2 に係る水素製造装置 2 0 の熱源を廃棄物焼却施設としてもよい。この場合も同様の効果を奏する。

実施の形態 5.

図 6 は本発明の実施の形態 5 に係る水素含有ガスを燃焼する発電施設の構成ブロック図で、この実施の形態 5 は、実施の形態 1 に係る水素製造装置 2 0

を稼動して製造した水素含有ガスを、ガスタービン発電機に燃料として供給して発電するものである。

大型熱プロセス設備 11 からの廃熱を回収するボイラ 12 で発生させた高圧水蒸気を反応装置 1 に供給して、反応装置 1 内で衝撃波を発生させ、その衝撃波により反応装置 1 内の反応性粒子と水蒸気とが反応して水素含有ガスを生成する。反応装置 1 で生成され除塵機 15 で未反応の反応性粒子等が除去された水素含有ガスには水素の他に CO が含有され、高熱量の燃料として用いられる。水素含有ガスは貯蔵装置 30 で一旦貯蔵され、ガスタービン発電機 31 に供給される。

水素含有ガスをガスタービンで燃焼して発電することにより、従来の熱プロセスからの廃熱を回収して水蒸気タービンを駆動して発電することに比べて、発電効率を大幅に向上できる。また、水素含有ガスには硫黄化合物や塩化物などガスタービンでの燃焼に不適切な有害物が含まれていないので、有害物除去などの前処理を行う必要がなく、前処理のための設備費や運転費を低減できる。

また、水素含有ガスを貯蔵装置 30 で貯蔵することにより、電力需要の推移に合わせて、ガスタービンへ供給する水素含有ガスを調整して、発電量を調整することができるので、電力需給の平準化することができる。また、このようにすることにより、売電価格の高い時間帯に発電して売電収益を高めることができる。

以上のように本実施態様によれば、高温が必要な化学反応を、各種熱プロセスから排出される比較的低温の廃熱エネルギーを利用して安価に実現することができる。また、その化学反応方法を実現する装置は、比較的低温の廃熱エネルギーにより衝撃波を簡単に生成して瞬時に高温場を形成することができるため、装置の立ち上げおよび立ち下げを容易に行うことができ、例えば水素の供給要求が出されたときだけ水素生成反応を起こすことができる。これにより、運転費および設備費を抑えて安価に水素を製造し供給することができる。

## 実施の形態 6

図 7 は本発明の実施の形態 6 にかかる水素製造装置の概略構成を示す図である。

本実施形態にかかる水素製造装置は、図 7 に示すように、炭化水素を含有する反応性粒子として、廃棄物として収集されたプラスチック材（以下、廃プラスチックという）を破碎して得られた微粉状若しくは粉状の廃プラスチック（以下、廃プラスチック粉という）と水蒸気との混合体を反応させるための反応器 101 を備えている。

反応器 101 には、廃プラスチック粉を反応器 101 に供給する反応性粒子供給装置 102 が接続されている。反応性粒子供給装置 102 は、廃プラスチックを破碎する破碎機 102a と、破碎機 102a により得られた廃プラスチック粉を反応器 101 に高速開閉弁 102c を介して供給するフィーダ 102b とを有している。この破碎機 102a には、廃プラスチックが N<sub>2</sub>等の不活性ガスにより搬送されるようになっている。

又、反応器 101 には、水蒸気を反応器 101 に高速開閉弁 103b を介して供給する廃熱ボイラ 103a が接続されている。この廃熱ボイラ 103a は、焼結炉、加熱炉、ごみ焼却炉等の燃焼装置若しくは熱プロセス装置 108 からの廃熱を利用して高圧ガスとしての水蒸気を発生するものである。本実施形態では、廃熱ボイラ 103a からの水蒸気が後述の開閉手段によって瞬間的に開放されることにより、衝撃波を発生させるようになっており、廃熱ボイラ 103a と後述の開閉手段が衝撃波発生装置 103 を構成すると共に水蒸気供給装置をも兼ねている。

衝撃波発生装置 103 により発生した衝撃波により、反応器 101 内の混合体は、衝撃圧縮されて高温に加熱され水素が生成する。

又、高速開閉弁 102c 及び高速開閉弁 103b のかわりに反応器 101 に開閉部材を取り付けるようにしてもよい。

更に、反応器 101 には、反応器 101 内で廃プラスチック粉と水蒸気と



の混合体が反応することによって生成された高圧下の水素含有ガスを高速噴出するためのラバールノズル104が接続されている。

ラバールノズル104には、ラバールノズル104から排出された水素含有ガスを圧力緩和のため一旦収容するガスタンク105が連通して接続されている。

ガスタンク105には、ガスタンク105内で圧力緩和された水素含有ガス中から未反応の反応性粒子を除去するバグフィルタ装置106が連通して接続されている。

バグフィルタ装置106には、バグフィルタ装置106によって未反応の反応性粒子を除去された水素含有ガスから水素を分離する圧力振動吸着（PSA）装置107が接続されている。又、バグフィルタ106は、除去された未反応の反応性粒子を帰還させて再利用するため上述のフィーダ102bに接続されている。

圧力振動吸着装置107は、分離工程後に残った一酸化炭素（CO）を燃料として帰還させて有効利用するため上述の燃焼装置若しくは熱プロセス装置108に接続されている。

ここで、図8に基づき、反応器101について詳細に説明する。

図8（a）は反応器101の概略構成を示す図であり、図8（b）は図8（a）のI-I線横断面図である。

この反応器101は、図8（a）、（b）に示すように、炭化水素からなる廃プラスチック粉と水蒸気との混合体を衝撃圧縮して高温にするべく該混合体を収容する圧縮室101aが、回転体101bに周方向の複数位置に軸線方向に延びて回転体101bの軸線方向両端にて開口して形成されている。

この回転体101bの端面に対向する位置には、回転体101bの軸線方向両端部のそれぞれにて、回転体101bの回転を許容するよう該端面に対して所定の隙間をもって開閉部材101cが配設されている。この開閉部材101cと回転体101bの周面との間はシール部材101eによってシールされている。

また、シールとしてラビリンスを用いてもよい。

廃プラスチック粉、水蒸気が供給される側（以下、供給側という）の一方の開閉部材 101c には、圧縮室 101a 内に廃プラスチック粉を供給するため上述の反応性粒子供給装置 102 のフィーダ 102b と連通する開口 101c1 と、圧縮室 101a 内に水蒸気を供給するため上述の衝撃波発生装置 103 の廃熱ボイラ 103a と連通するガス噴射口たる開口 101c2 との二つの開口が形成されている。反応後の水素含有ガスが排出される側（以下、排出側という）の他方の開閉部材 101c には、上述のラバールノズル 104 が取り付けられている。

この回転体 101b は、軸受等の支持部材 101d によって回転自在に支持され、駆動手段（図示せず）によって回転駆動されるようになっている。そして、回転体 101b は、開口 101c2 が圧縮室 101a の開口と略同一半径方向位置で圧縮室 101a の開口と回転体 101b の端面とのいずれかに交互に断続的にあるいは連続的に対向するよう、断続的にあるいは連続的に回転されるようになっている。

開口 101c2 は、回転体 101b の端面と対向するときに回転体 101b の端面に接触して廃熱ボイラ 103a と圧縮室 101a との連通が遮断され、圧縮室 101a の開口と対向するときに圧縮室 101a の開口と接続されて圧縮室 101a と廃熱ボイラ 103a とが連通されるようになっている。このように、本実施形態では、開口 101c2 と回転体 101b の端面とが協働して圧縮室 101a と廃熱ボイラ 103a とを連通又は遮断させる開閉手段を構成している。

一方、開口 101c1 も、開口 101c2 と圧縮室 101a の開口との対向時に、開口 101c2 とは半径方向反対側の圧縮室 101a の開口と接続されて圧縮室 101a とフィーダ 102b とが連通されるようになっている。このように本実施形態では、開口 101c1 と回転体 101b の端面とが協働して圧縮室 101a とフィーダ 102b とを連通又は遮断させる開閉手段を構成している。

又、ラバールノズル 4 は、開口 101c2 と回転体 101b の端面との対向

時に、排出側で圧縮室101aの開口と接続されて圧縮室101aとガスタンク105とが連通されるようになっている。

このように、複数の圧縮室101aは、図8(b)に示すように、回転体101bの回転中に、順次断続的に或いは連続的に、開口101c1が圧縮室101aの開口と対向する位置にきたときにフィーダ102bからの廃プラスチック粉が供給され、その廃プラスチック粉の供給を受けた圧縮室101aの開口が回転体101bの180°回転後に開口101c2と対向する位置となったときに廃熱ボイラ103aから水蒸気が供給されるようになっている。又、開口101c2が回転体101bの端面に対向して遮断された状態から圧縮室101aの開口と対向する位置にきて連通された状態になったときに、廃熱ボイラ103aからの高圧の水蒸気が瞬間的に開放されるので、開口101c2から噴出される水蒸気は衝撃波となって圧縮室101a内を伝播することとなる。

次に、本実施形態の水素製造装置における水素製造の工程について、図7及び図8に基づき説明する。

①まず、開口101c1と連通する圧縮室101aに廃プラスチック粉が反応性粒子供給装置102のフィーダ102bによって高速開閉弁102cを介して供給される。又、フィーダ102bには、破砕機102aによって廃プラスチックが碎かれて得られた廃プラスチック粉が供給される。この廃プラスチックは、N<sub>2</sub>等の不活性ガスによって破砕機102aへ搬送される。尚、反応性粒子としては、廃プラスチック粉の他、粉コークス、微粉炭も利用可能であり、廃プラスチック粉の代わりに粉コークスや微粉炭をフィーダ2bに導入してもよい。

②次に、廃プラスチック粉の供給を受けた圧縮室101aは、上述の回転体101bの回転により開口101c2に連通する。このとき、開口101c2が回転体101bの端面との対向によって閉ざされて遮断された状態から瞬間的に圧縮室101aに連通した状態となることにより、廃熱ボイラ103aからの高圧の水蒸気が瞬間的に開放されて衝撃波となって圧縮室101a内に供給され伝播する。本実施形態では、廃熱ボイラ103a内の水蒸気は、例えば、温度が4

00℃であり、圧力が4MPaである。

③廃プラスチック粉の供給を受けた圧縮室101a内に高圧の水蒸気による衝撃波が伝播すると、圧縮室101a内の廃プラスチック粉が水蒸気による衝撃波によって圧縮室101aの一方の端部に向けて衝撃圧縮されて高温となり、廃プラスチック粉と水蒸気が反応して水素含有ガスを生成する。このとき、本実施形態では、圧縮室101a内の混合体は温度1500℃、圧力4MPaとなる。又、廃プラスチック粉は一般に化学式 $C_{2n}H_{4n}$ で表され、このときの圧縮室101a内で生じる主反応は $C_{2n}H_{4n} + 2nH_2O \rightarrow 2nCO + 4nH_2$ である。このように回転体1bを連続的に回転させることにより反応を連続して行い、水素含有ガスを連続的に生成する。

④そして、圧縮室101a内で生成された水素含有ガスは、反応器101に取り付けられたラバールノズル104を経由してガスタンク105内に噴射されて一旦収容される。このとき、ラバールノズル104から高速噴出された高温の水素含有ガスは断熱のもとで急冷却されるので、逆反応が抑制される。又、ガスタンク105は、比較的大容量になっているので、ラバールノズル104から噴射された高圧の水素含有ガスが一旦収容されることにより該水素含有ガスの圧力が緩和される。このように、本実施形態では、高温高圧の水素含有ガスの圧力及び温度を低下させて、逆反応を防止して反応の高効率化が図られている。

⑤その後、ガスタンク105内の水素含有ガスは、フィルタ装置たるバグフィルタ装置106によって、反応せずに水素含有ガス中に残った反応性粒子が除去される。このバグフィルタ装置106によって捕集された反応性粒子は、上述のフィーダ102bに戻されて再利用される。

⑥バグフィルタ装置106を通過した水素含有ガスは、圧力振動吸着装置107により水素と一酸化炭素(CO)とに分離され、水素を得る。ここで、水素含有ガスから分離されたCOは、燃料として有効活用されるべく、上述の燃焼装置若しくは熱プロセス装置108に利用される。

以上、本発明の内、実施形態の一部について説明したが、本実施形態は上

述の実施形態に限られるものではなく、特許請求の範囲に記載された本実施形態の要旨の範囲で様々な変更が可能である。例えば、廃熱ボイラ 103 a の高圧水蒸気によって衝撃波を発生させる方法としては、上述の他、高速開閉弁 103 b の開閉によっても可能であり、又、圧縮室 101 a と廃熱ボイラ 103 a との間に膜を設けこの膜を破って開放することによっても可能である。

また、反応性粒子として用いる微粉状の廃プラスチック粉や粉コークスの粒径は 100  $\mu\text{m}$  以下とすると反応が確実に行われるので好ましい。

更に、反応性粒子としては、廃プラスチック粉や粉コークスだけでなく、他の炭化水素や炭素を含有する物質を利用可能である。

又、温度、圧力等の条件については、本実施形態に説明したものに限るものではなく、圧縮室内で反応性粒子と水蒸気が反応して水素含有ガスが生成される条件であればよい。

以上説明したように、本実施形態によれば、炭化水素若しくは炭素を含有する反応性粒子と水蒸気とが混合されてなる混合体を収容する圧縮室内に、高圧ガスを噴出することにより生じた衝撃波が伝播して上記混合体を衝撃圧縮することにより、急激に上記混合体を高温加熱せしめて、上記反応性粒子と上記水蒸気が反応して水素含有ガスを生成させるようにしたので、混合体の反応に必要な十分な熱を短時間で効率よく混合体に供給できるため、本発明方法では、反応器内を予め高温とする必要がなく、立ち上げ工程や立ち下げ工程でのエネルギーロスが軽減される。又、装置が立上げから立ち下げまで連続して長時間に亘って高温状態とはならず、反応に必要な時間及び領域だけ高温にするので、エネルギーロスが軽減されるだけでなく時間的ロスも軽減されるので、小規模生産あるいは所望時の短時間生産が可能となる。又、原料が反応性粒子及び水蒸気であればよいので、純燃料を必要としない。更に、反応性粒子と水蒸気は圧縮室内での主反応で二酸化炭素を生成しないので、二酸化炭素の排出を抑えつつ水素を製造することができる。

又、本実施形態における装置では、混合体の反応に必要な十分な熱を短時間

で効率よく混合体に供給できるため、反応器内を予め高温とする必要がなく立ち上げ工程や立ち下げ工程でのエネルギーロスが軽減されるので、運転費が安価な装置となる。又、装置が立上げから立ち下げまで連続して長時間に亘って高温状態とはならず、反応に必要な時間及び領域だけ高温にするので、耐火物を多用する必要がなく、設備費が安価な装置となり、更には、エネルギーロスが軽減されるだけでなく時間的ロスも軽減されるので、小規模生産が可能な装置となる。

#### 実施形態 7

以下、添付図面にもとづき、本発明における実施の形態 7 にかかる水素製造装置を説明する。

図 9 において、軸線 201 を中心とする円筒形状のシリンダ 202 は密閉されており、内部にピストン 203 が上記軸線方向に摺動自在に配されており、シリンダ 202 内の空間を加圧空間 P と背圧空間 B とに区分している。

上記シリンダ 202 内には加圧空間 P に収束管 204 が取り付けられている。該収束管 204 は上記シリンダ 202 の一方の端壁 202A を貫通してシリンダ 202 外へ延出している。この収束管 204 はシリンダ 202 内にある入口開口 204A が大径となっており、上記シリンダ 202 外の部分 204B が出口開口に向け小径となっている。上記入口開口 204A は次第にその内径が小さくなって上記部分 204B へ移行している。入口開口 204A の部分はテーパ状となっている。

上記ピストン 203 は、本実施形態では、金属板をプレス加工して軽量に作られており、シリンダ 202 に対し瞬時移動するのに好都合な低質量となっている。このピストン 203 は、シリンダ 202 の内壁と摺接するスカート部 203A と、上記加圧空間 P と背圧空間 B を区分する部分にテーパ部 203B とを有している。該テーパ部 203B は収束管 204 の入口開口 204A のテーパ部分と密に接するように好適なテーパとなっている。さらに、上記ピストン 203 とシリ

ンダ 202 の他方の端壁 202B との間には、弾性体としてのコイルばね 205 が配設されていて、ピストン 203 に背圧を与え収束管 204 の入口開口 204A に圧している。

さらに、シリンダ 202 には、上記加圧空間 P に通ずる高圧水蒸気供給管 206 が、背圧空間 B に通ずる背圧水蒸気供給管 207 そして排気管 208 がそれぞれ接続している。

かかる本実施形態の衝撃波発生装置は図 10 のごとく用いられる。上記シリンダ 202 に接続されている高圧水蒸気供給管 206、背圧水蒸気供給管 207 そして排気管 208 には、それぞれ弁 206A、207A そして 208A が設けられており、弁 206A は通常、開放されており、弁 207A、208A はシーケンスに則り設定時に開となる。本例では、背圧水蒸気として、高圧水蒸気供給管 206 から供給される高圧水蒸気の一部を用いるようになっており、上記背圧水蒸気供給管 207 は高圧水蒸気供給管 206 から分岐して形成されている。

衝撃波発生装置の収束管 204 は、その出口側で、反応装置 210 に接続されている。この反応装置 210 は、特にその形態に限定はなく、衝撃波発生装置からの高圧水蒸気による衝撃波を受けて原料たる反応性粒子と共に上記高圧水蒸気が瞬時に圧縮されるに適した圧縮室を有していればよい。

上記圧縮室には、該圧縮室内への反応性粒子供給のための反応性粒子供給管 211、生成ガス取出管 212、排気管 213 が接続されており、所定時に開閉する弁(図示せず)を備えている。

次に、衝撃波を用いて水蒸気と反応性粒子としての廃プラスチック粉とを反応させて、水素ガスを生成する例のもとに、本実施形態についての作動を説明する。

図 10 において、高圧水蒸気供給管 206 からは開状態の弁 206A を経てシリンダ 202 の加圧空間 P 内に高圧水蒸気が供給されている。上記弁 206A は、通常、開のままとなっている。又、開状態の弁 207A を経て上記高圧水蒸気は背圧水蒸気供給管 207A へも供給されている。

① かかる状態で、シリンダ 2 の加圧空間 P そして背圧空間 B は上記高圧水蒸気で充満しており、ピストン 203 はコイルばね 205 の付勢力によって収束管 204 の入口開口 204A に圧せられていて、この入口開口 204A はピストン 203 によって閉じられている（図 12（A）参照）。

② 次に、反応装置 210 の圧縮室へ反応性粒子供給管 211 から原料たる反応性粒子としての廃プラスチック粉を供給充填する（図 11（1）参照）。

③ しかる後、弁 208A を瞬間的に開放し背圧空間 B を減圧する（図 11（2）参照）。したがって、図 12（B）のごとく、加圧空間 P の圧力が背圧空間 B の圧力及びばねの付勢力に勝って、ピストン 203 は背圧に抗して後退し、収束管 204 の入口開口 204A との間に隙間が形成される。この隙間から高圧水蒸気が収束管 204 内に流入する（図 12（B）参照）。この瞬時の高圧水蒸気の流入によって収束管 204 内では衝撃波が発生し、この衝撃波は収束管 204 の出口開口へ伝播され、反応装置 210 の圧縮室内へ入った水蒸気を廃プラスチック粉と共に瞬時に圧縮して昇温せしめ、この瞬時に反応が行なわれ、水素ガスが生成される。

④ 水素ガスが、次の瞬間に生成ガス取出管 212 から取り出される（図 11（3）参照）と共に、背圧として高圧水蒸気が再び背圧空間 B へ供給され（図 12（C）参照）、ピストン 203 は再び収束管 204 の入口開口 204A を閉じる（図 12（D）参照）。又、反応装置 210 では、圧縮室内の水蒸気等の排ガスが排気管 213 から排出される。（図 11（4）参照）

なお、図 10 の破線で示される管路 209 で加圧空間 P と弁 207A とを接続しておくならば、背圧空間 B への高圧水蒸気の供給の際に、加圧空間に残留しようとする高圧水蒸気が弁 207A の開動作により背圧空間 B へ流出するので、加圧空間 P は常に新しい高圧水蒸気で充満されており、高温度を保持できる。

上述の実施形態では、反応性粒子供給管 211、生成ガス取出管 212、排気管 213 のそれぞれに開閉弁を設け、これらの開閉弁と弁 207A、208A とをカム機構により、図 11 に示す動作となる順序及び開時間長で各弁が順次



開閉するようにしてもよい。又、各弁が該順序及び開時間長で順次開閉するように各弁を駆動制御する制御回路によって各弁の開閉動作を制御するようにしてもよい。

本実施形態は、以上のごとく、ピストン以外是他部材と相対移動する部材はなく、きわめて簡単な構造で衝撃波を発生することができ、水素ガスを衝撃波を用いて反応生成する装置の小型化・簡単化そして低価格化を可能とする。

### 請求の範囲

#### 1. 水素製造方法は、以下からなる：

熱源との熱交換により流体を加熱し、該流体を200℃以上且つ400℃以下の高圧ガスにする工程；

原料を、反応装置内に供給する工程；

高圧ガスを瞬間的に該反応装置内に開放して、衝撃波を発生させる工程；

そして、

該発生させた衝撃波により該原料を衝撃圧縮して加熱することにより、水素を生成する工程。

#### 2. 水素製造方法は、以下からなる：

熱源との熱交換により流体を加熱し、該流体を、反応前の反応装置内圧力に対して、5倍以上の圧力を有する高圧ガスにする工程；

原料を、反応装置内に供給する工程；

該高圧ガスを瞬間的に該反応装置内に開放して、衝撃波を発生させる工程

；

該発生させた衝撃波により、該原料を衝撃圧縮して加熱することにより、水素を生成する工程。

#### 3. 水素製造方法は、以下からなる：

熱源との熱交換により低沸点流体を加熱し、該低沸点流体を高圧ガスにする工程；

原料を反応室内に供給する工程；

該高圧ガスを瞬間的に該反応室内に開放することにより、衝撃波を生成する工程；

該生成した衝撃波により、該原料を衝撃圧縮して加熱することにより、水

素を生成する工程。

4. 請求の範囲 1、2、3 のいずれか一つに記載の水素製造方法は、更に、該水素と他の生成物とを分離する水素分離工程、を含む。

5. 請求の範囲 1、2、3、のいずれか一つに記載の水素製造方法において、該熱源は、火力発電所、廃棄物焼却施設、廃棄物処理施設、製鉄所の製鉄設備、製鉄所の製鋼設備、スクラップ溶解設備、非鉄金属精錬設備、セメント焼成設備、燃焼設備および地熱利用設備に備えられた熱発生源のうち、少なくともいずれか一つである。

6. 請求の範囲 1、2、3、のいずれか一つに記載の水素製造方法において、該熱源は、発生する熱から水蒸気を発生させ、該水蒸気を発電に使用する燃焼設備である。

7. 請求の範囲 1、2、3、のいずれか一つに記載の水素製造方法において、該熱源は、発生する熱から水蒸気を発生させ、該水蒸気を発電に使用する燃焼設備であり、該高圧ガスは余剰水蒸気である。

8. 水素製造装置は、以下からなる：

熱源；

該熱源との熱交換により流体を加熱し、該流体を 200℃以上且つ 400℃以下の高圧ガスにするための熱交換器；

原料を、該反応装置内に供給するための原料供給装置；

該高圧ガスを瞬間的に開放することにより、衝撃波を発生させ、該衝撃波により該原料を衝撃圧縮して加熱することにより、水素を生成するための反応装置。

9. 水素製造装置は、以下からなる：

熱源；

該熱源との熱交換により流体を加熱し、該流体圧力を、反応前の反応装置内の該流体圧力に対して、5倍以上の圧力を有する高圧ガスにするための熱交換器；

原料を、該反応装置内に供給するための原料供給装置；

該高圧ガスを瞬間的に開放することにより衝撃波を発生させ、該衝撃波により、該原料を衝撃圧縮して加熱することにより、水素を生成するための反応装置。

10. 水素製造装置は、以下からなる：

熱源；

熱交換により低沸点流体を加熱し、該流体を、高圧ガスにするための加熱器；

原料を、反応装置内に供給するための供給装置；

該高圧ガスを瞬間的に開放することにより、衝撃波を生成し、該衝撃波により該原料を衝撃圧縮して加熱することにより、水素を生成するための該反応装置。

11. 請求の範囲8、9、10のいずれかに記載の水素製造装置において、該熱源は、火力発電所、廃棄物焼却施設、廃棄物処理施設、製鉄所の製鉄設備、製鉄所の製鋼設備、スクラップ溶解設備、非鉄金属精錬設備、セメント焼成設備、燃焼設備および地熱利用設備に備えられた熱発生源の内、少なくともいずれか一つである。

12. 請求の範囲8、9、10のいずれかに記載の水素製造装置は、更に、該水

素と他の生成物とを分離する分離装置を、含む。

13. 請求の範囲8, 9, 10のいずれか一つに記載の水素製造装置において、該熱源は、発生する熱から水蒸気を発生させ、該水蒸気を発電に使用する燃焼設備である。

14. 請求の範囲8, 9, 10のいずれか一つに記載の水素製造装置において、該熱源は、発生する熱から水蒸気を発生させ、該水蒸気を発電に使用する燃焼設備であり、該高圧ガスは、余剰水蒸気である。

15. 水素供給施設は、以下を含む：

熱源；

該熱源との熱交換により、200℃以上且つ400℃以下の水蒸気を生成するための水蒸気生成装置；

原料を反応装置内に供給するための原料供給装置；

該水蒸気を瞬間的に開放して衝撃波を発生させ、該衝撃波により該原料を衝撃圧縮して加熱することにより、水素を生成するための該反応装置；

該反応装置内で生成された該水素を含む生成物から、該水素を分離するための分離装置；

該分離された該水素を供給するための水素供給装置。

16. 水素供給施設は、以下を含む：

熱源；

該熱源との熱交換により、反応前の反応装置内の圧力に対して5倍以上の圧力の水蒸気を生成する水蒸気生成装置；

原料を該反応装置内に供給するための原料供給装置；

該水蒸気を瞬間的に開放して衝撃波を発生させ、該衝撃波により、該原

料を衝撃圧縮して加熱することにより、水素を生成するための反応装置；

該反応装置内で生成された該水素を含む生成物から該水素を分離するための分離装置；

分離された該水素を供給するための水素供給装置。

17. 請求の範囲15、16のいずれか一つに記載の水素供給施設において、該熱源は、発生する熱から水蒸気を発生させ、該水蒸気を発電に使用する燃焼設備であり、水素供給要求があったときに、該水蒸気の少なくとも一部を水素生成に用いる。

18. 水素含有ガスを燃焼させる発電方法は、以下からなる：

熱源との熱交換により流体を加熱し、該流体を200℃以上且つ400℃以下の高圧ガスにする工程；

原料を、反応装置内に供給する工程；

高圧ガスを瞬間的に該反応装置内に開放して、衝撃波を発生させる工程；

該発生させた衝撃波により該原料を衝撃圧縮して、加熱することにより水素含有ガスを生成する工程；そして、

該水素含有ガスをガスタービンで燃焼させて、発電する工程。

19. 水素含有ガスを燃焼させる発電方法は、以下からなる：

熱源との熱交換により流体を加熱し、該流体を反応前の反応装置内圧力に対して、5倍以上の圧力を有する高圧ガスにする工程；

原料を、反応装置内に供給する工程；

高圧ガスを瞬間的に該反応装置内に開放して、衝撃波を発生させる工程；

該発生させた衝撃波により該原料を衝撃圧縮して、加熱することにより水素含有ガスを生成する工程；そして、

該水素含有ガスをガスタービンで燃焼させて、発電する工程。

20. 請求の範囲18, 19のいずれか一つに記載の水素含有ガスを燃焼する発電方法は、更に、以下を含む。

該水素含有ガスを貯蔵する工程、及び、  
電力需要に合わせて発電量を調整する工程。

21. 水素製造方法は、以下からなる：

炭化水素若しくは炭素を含有する反応性粒子を、反応器の圧縮室内に供給するための、反応性粒子供給工程；

水蒸気を該圧縮室内に供給するための、水蒸気供給工程；

該圧縮室内に供給された該反応性粒子と該水蒸気により混合された混合体を、加熱し、高温にすることにより、該反応性粒子と該水蒸気を反応させて、水素含有ガスを生成させるための反応工程であって、ここで、該反応工程は、高圧ガスを噴出することにより生じた衝撃波により該圧縮室内の該混合体を衝撃圧縮することにより、且つ、該混合体を高温に加熱することにより、該反応性粒子と該水蒸気を反応させる工程を含む；

該反応工程で生成された該水素含有ガスから水素を分離する分離工程。

22. 請求の範囲21に従う方法は、更に、高圧ガスとして該水蒸気を用い、該水蒸気を、該圧縮室に供給する工程を含む。

23. 請求の範囲21または22に従う方法において、該反応性粒子は、廃プラスチック粉、熔融プラスチックの噴霧粒子、微粉炭、及び、粉コークスの内、いずれか一つである。

24. 炭化水素若しくは炭素を含有する反応性粒子と水蒸気との混合体を加熱し高温にすることにより、該反応性粒子と該水蒸気を反応させ、水素含有ガスを生

成させ、該水素含有ガスから水素を分離するための水素製造装置は、以下を含む  
；

該反応性粒子及び該水蒸気の該混合体を衝撃圧縮するために該混合体を  
収容する圧縮室；

該圧縮室内に該反応性粒子を供給するための反応性粒子供給手段；

該圧縮室内に該水蒸気を供給するための水蒸気供給手段；

該圧縮室内に供給された、該反応性粒子及び該水蒸気を混合して成る該  
混合体を、衝撃圧縮するための衝撃波を発生させる衝撃波発生手段、ここで、該  
衝撃波発生手段は、以下を有する、

高压ガスを収容し、該圧縮室に連通するためのガス収容室；及び、

該ガス収容室と該圧縮室とを連通或いは遮断させるための開閉手段；

ここで、該開閉手段により該ガス収容室内の該高压ガスが瞬間的に  
噴出することにより発生する衝撃波を、該圧縮室内に伝播させ、該圧縮室内の該  
混合体を衝撃圧縮して高温に加熱することにより、該混合体中の該反応性粒子と  
該水蒸気が反応させ、該水素含有ガスが生成する。

25. 請求の範囲24に記載の水素製造装置は、更に、以下を含む：

回転可能な回転体において、周方向の複数位置に位置し、軸線方向に延  
び、且つ、該回転体の軸線方向の少なくとも一方の端面に開口して形成される圧  
縮室；

該圧縮室の開口と同一半径方向位置に位置し、該回転体の回転により該  
圧縮室の開口と該回転体の端面とに交互に断続的に対向することにより、ガス収  
容室に連通するガス噴射口、を有する開閉手段；該開閉手段においては、該回転  
体の端面と該ガス噴射口を対向させることにより、該ガス噴射口を閉じる遮断状  
態にし、該圧縮室の開口と該ガス噴射口を対向させることにより、該ガス噴射口  
を開放して連通状態にする；

該水素製造装置においては、該遮断状態と該連通状態が交互に繰り返さ

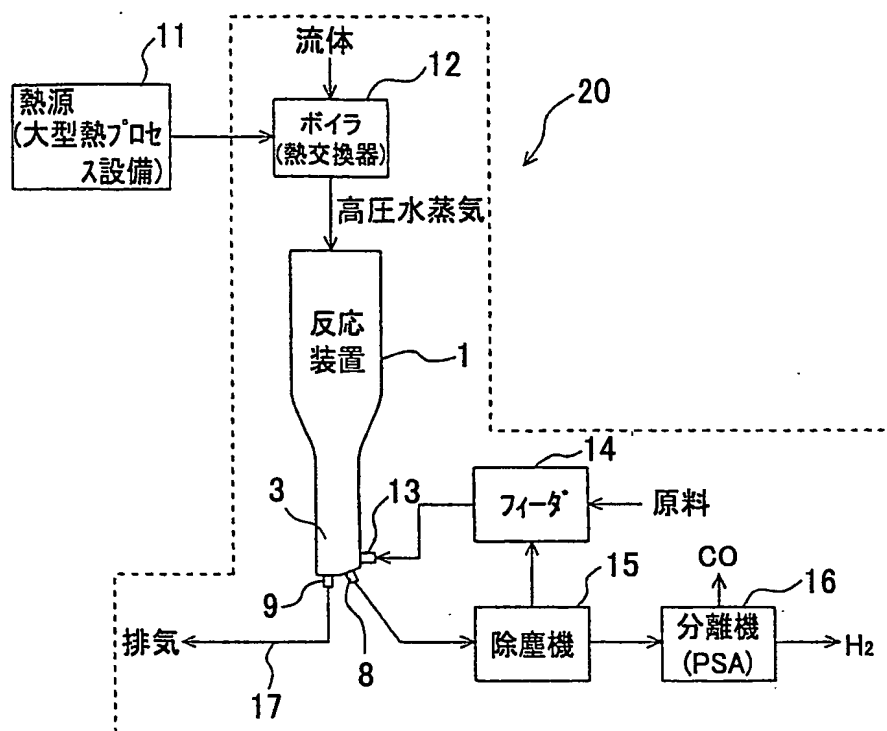


れることにより、高圧ガスによる衝撃波が、複数の圧縮室に断続的に伝播する。

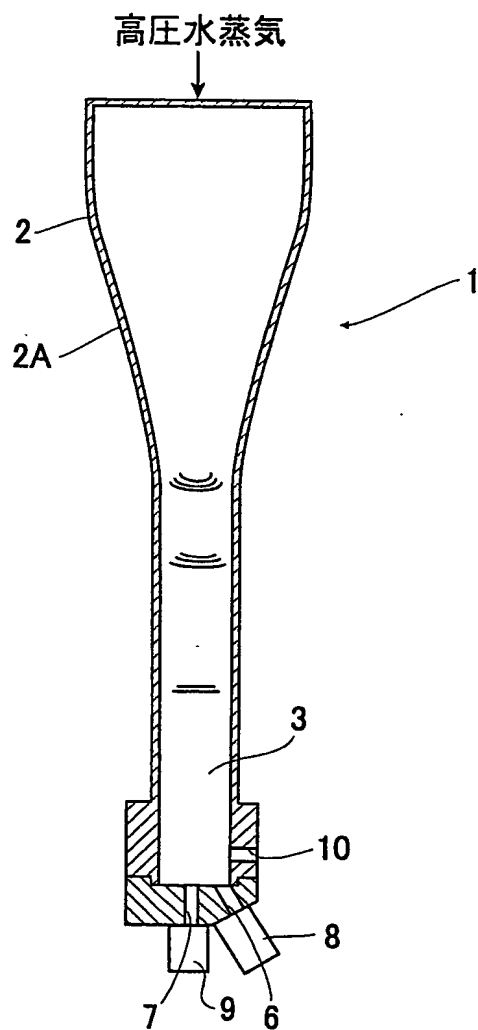
26. 請求の範囲24または25に記載の水素製造装置は、更に、該衝撃波発生手段が、廃熱ボイラにより生成された該水蒸気を、該ガス収容室内に、該高圧ガスとして収容するための水蒸気供給手段を有する。

27. 請求の範囲24、25、26のいずれか一つに記載の水素製造装置は、更に、該圧縮室の下流に配設された、ラバールノズル、ガスタンク、フィルタ装置及び水素分離装置を含む。

第1図

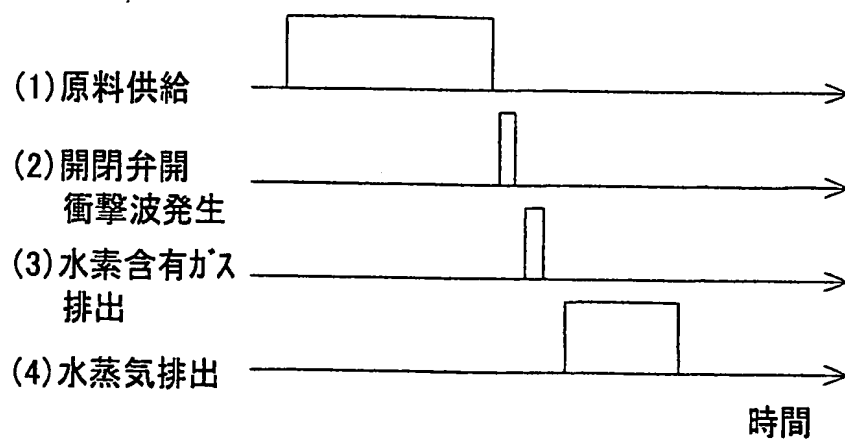


第2図

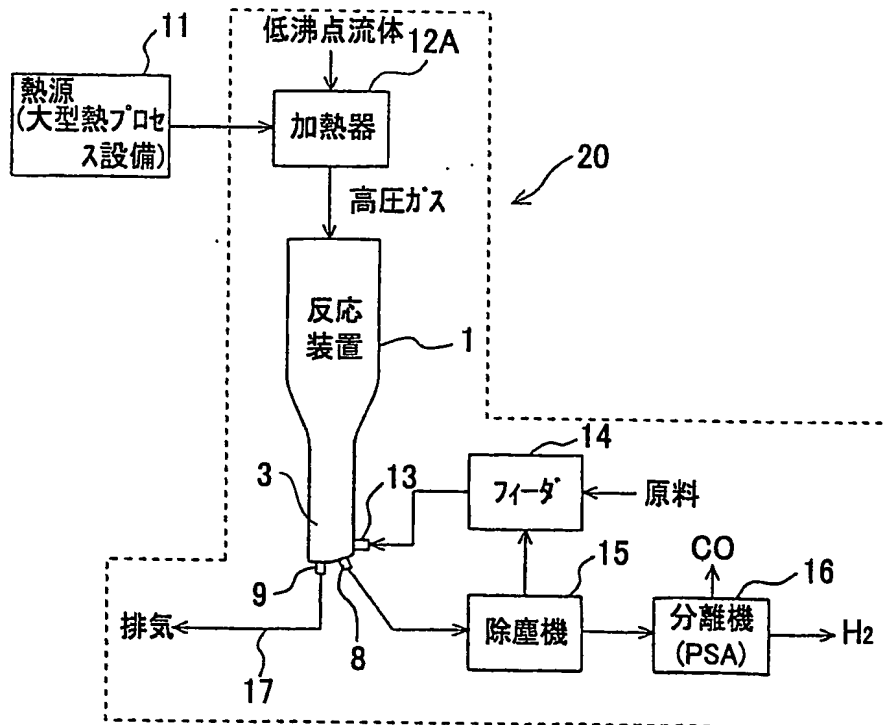


3/11

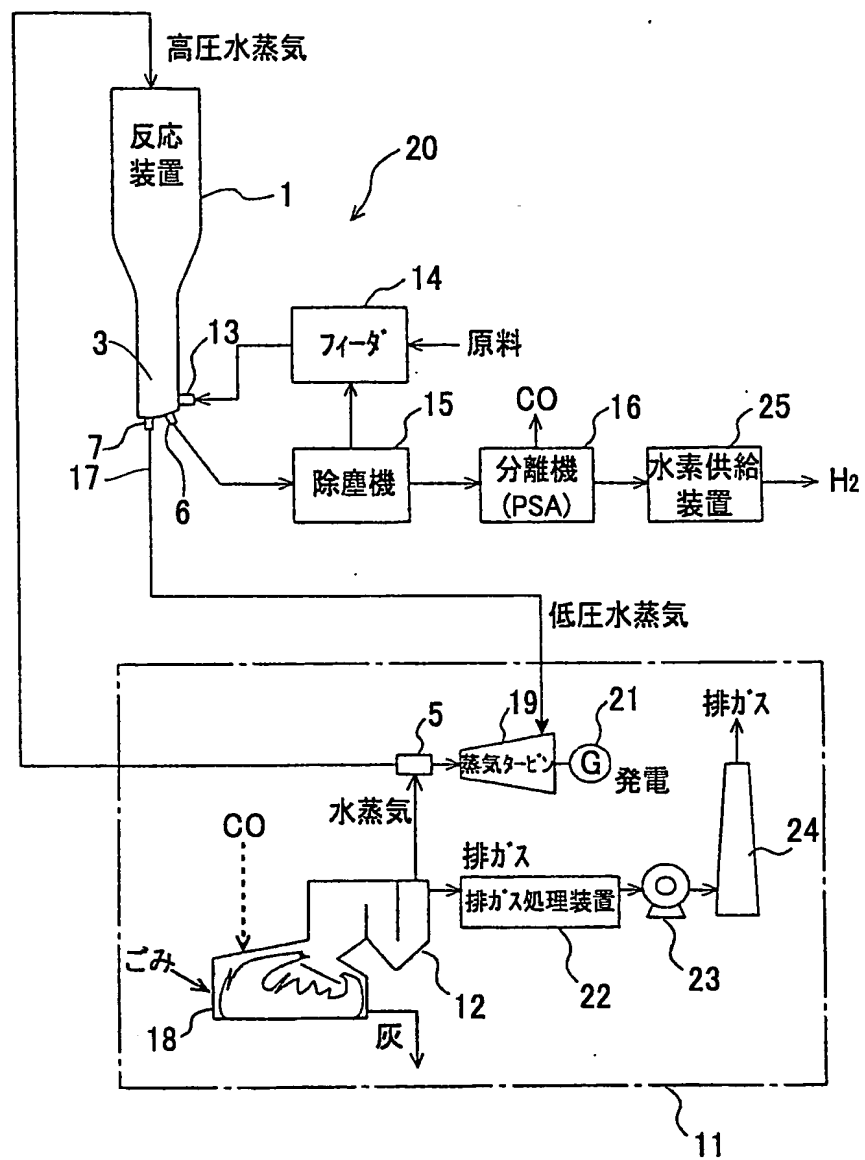
第3図



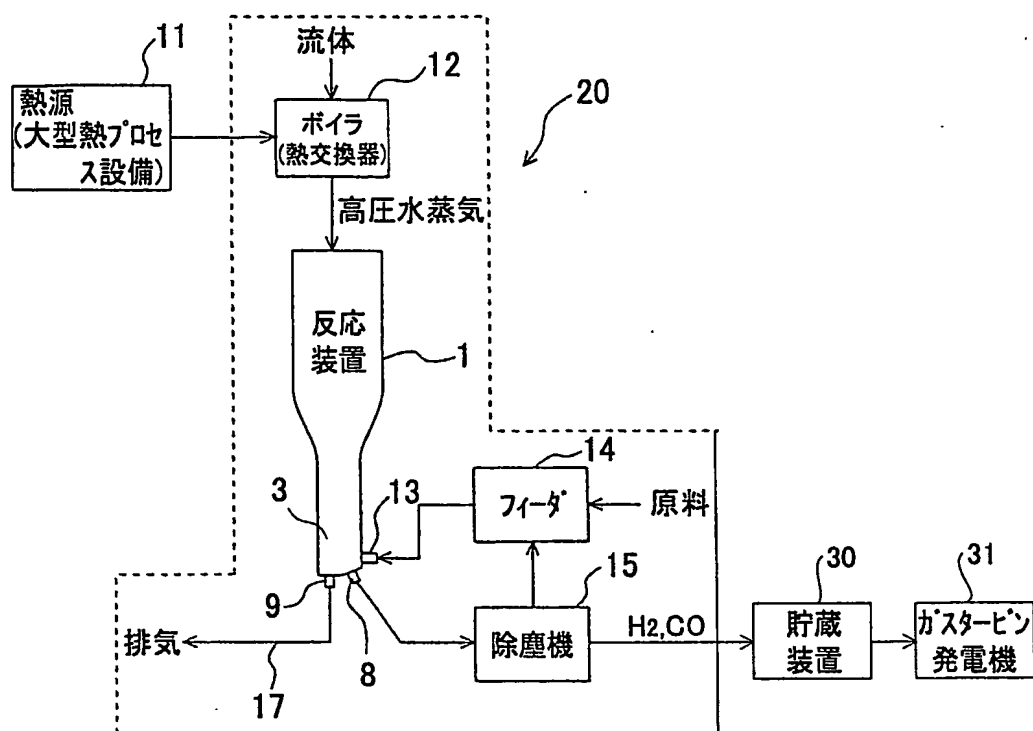
第4図



第5図

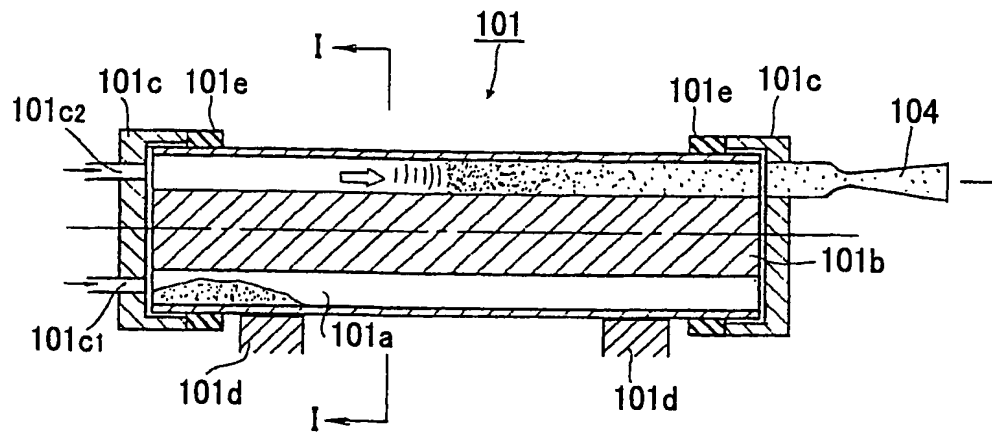


第6図

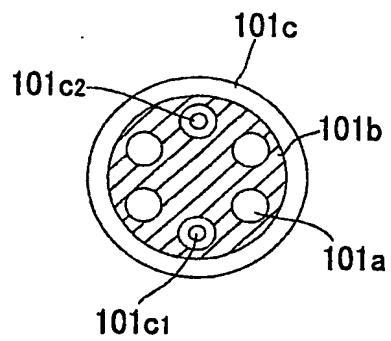




第8図(a)

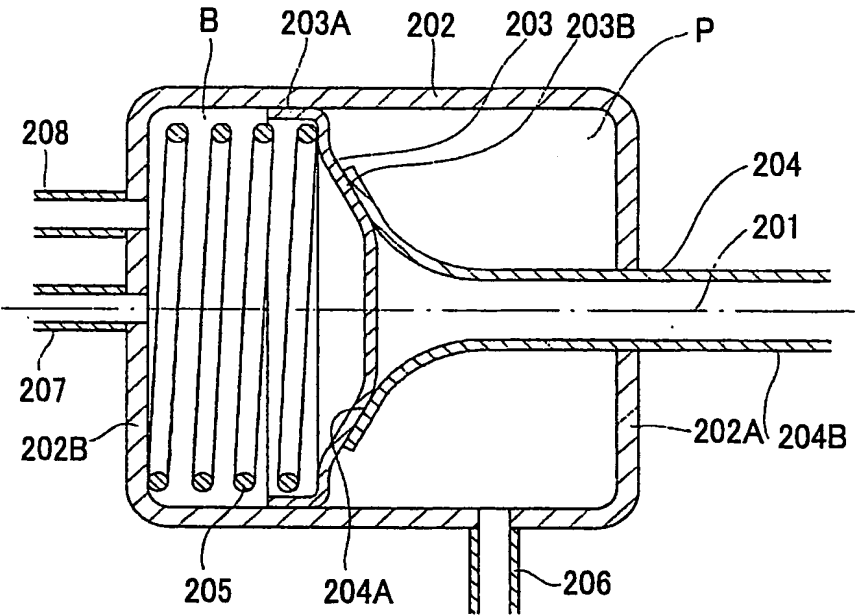


第8図(b)

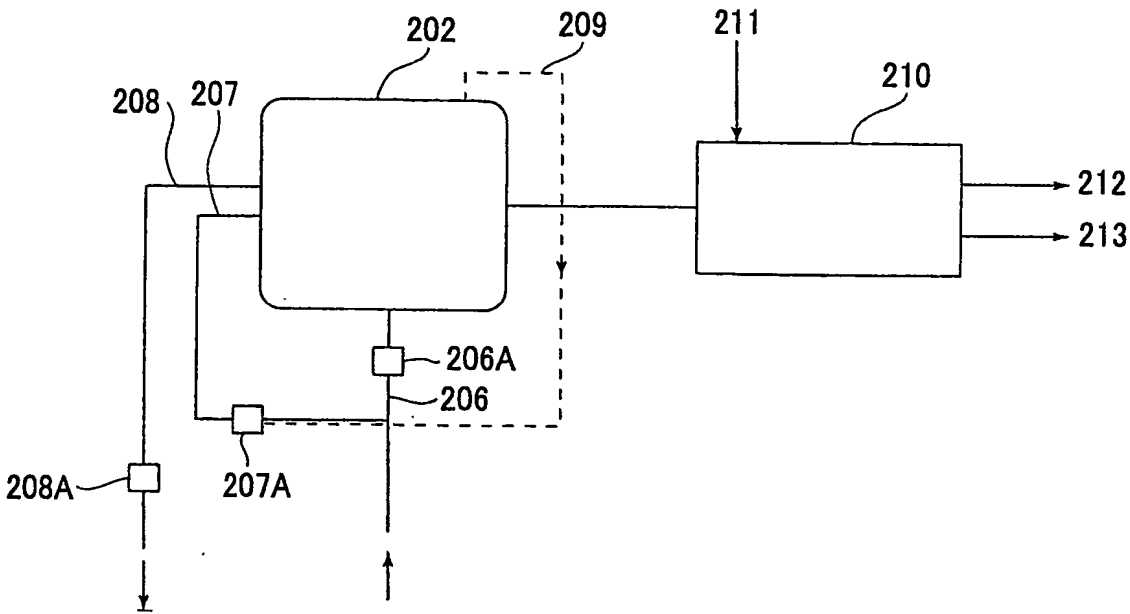




第9図

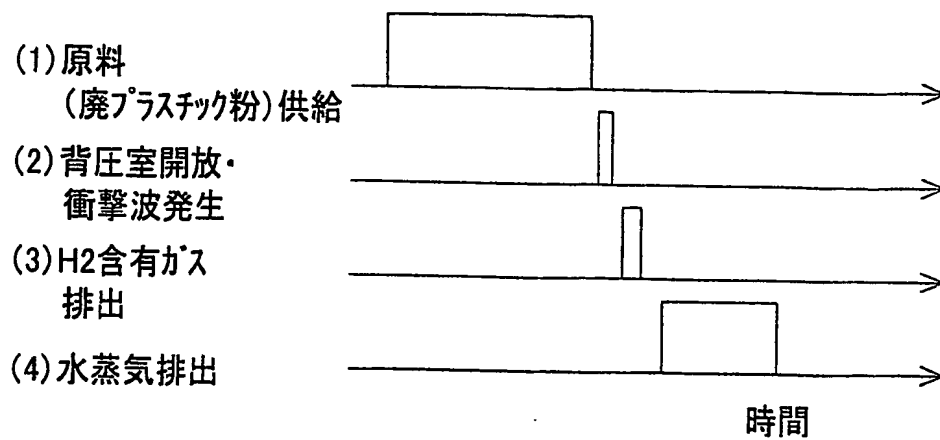


第10図

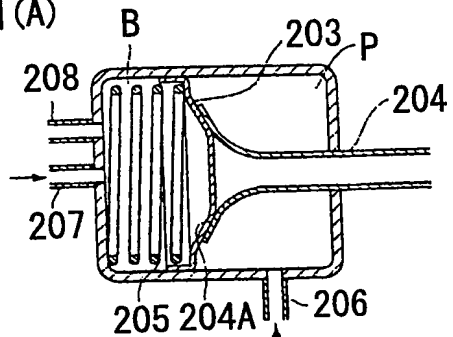


10/11

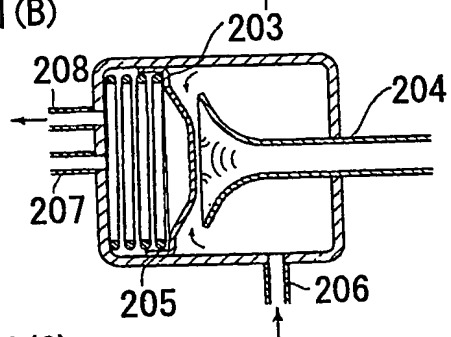
第11図



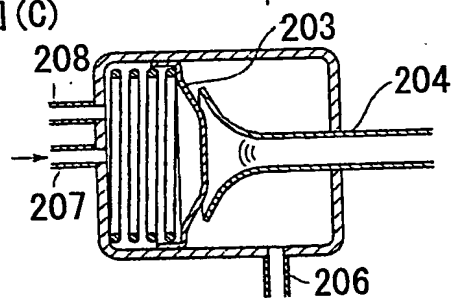
第12図 (A)



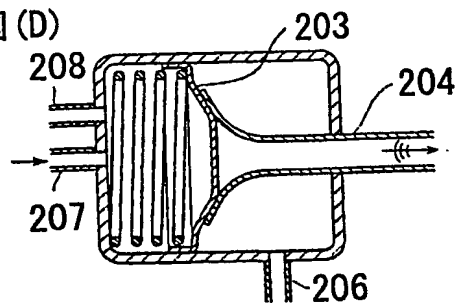
第12図 (B)



第12図 (C)



第12図 (D)



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/03940

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> C01B3/02, B01J3/08, C08J11/10, C10J3/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C01B3/02, B01J3/08, C08J11/10, C10J3/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2003
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2003	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2003

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPI (DIALOG)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 62-236892 A (Distrigaz S.A.), 16 October, 1987 (16.10.87), Full text & EP 240483 A1 & US 4813179 A	2-5, 9-12, 16, 21-23
Y	JP 50-122503 A (INSTITUT DE RECHERCHES DE LA SIDERURGIE FRANCAISE (IRSID)) 26 September, 1975 (26.09.75), Full text & FR 2270201 A1 & DE 2510080 A1 & GB 1467123 A	2-5, 9-12, 16, 21-23
A	JP 41-005724 B1 (Sun Oil Co.), 29 March, 1966 (29.03.66), Full text (Family: none)	1-17, 21-27

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

<p>* Special categories of cited documents:</p> <p>"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>"E" earlier document but published on or after the international filing date</p> <p>"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)</p> <p>"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p>	<p>"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention</p> <p>"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone</p> <p>"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art</p> <p>"&amp;" document member of the same patent family</p>
--	---

Date of the actual completion of the international search  
04 July, 2003 (04.07.03)

Date of mailing of the international search report  
08 July, 2003 (08.07.03)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/03940

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 5-280373 A (Toshiba Corp.), 26 October, 1993 (26.10.93), Full text (Family: none)	19, 20

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/03940

**Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)**

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
2. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
3. ☐ Claims Nos.:  
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

**Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)**

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

Claims 1 to 7 and 21 to 23 relate to a hydrogen production method, claims 8 to 14 and 24 to 27 relate to a hydrogen production apparatus, and claims 15 to 17 relate to hydrogen supply facilities. whereas, claims 18 to 20 are characterized in a method for generating electric power, and accordingly, do not so linked with above groups of inventions as to form a single general inventive concept.

1. ☒ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. ☒ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.: 1 to 17 and 21 to 27

Remark on Protest ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.  
☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C 0 1 B 3 / 0 2, B 0 1 J 3 / 0 8,  
C 0 8 J 1 1 / 1 0, C 1 0 J 3 / 0 0

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C 0 1 B 3 / 0 2, B 0 1 J 3 / 0 8,  
C 0 8 J 1 1 / 1 0, C 1 0 J 3 / 0 0

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年  
日本国公開実用新案公報 1971-2003年  
日本国実用新案登録公報 1996-2003年  
日本国登録実用新案公報 1994-2003年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

W P I (D I A L O G)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	J P 6 2 - 2 3 6 8 9 2 A (デイス 트리 ガーズ・ソシエテ・アノ ニム) 1 9 8 7. 1 0. 1 6 全文 & E P 2 4 0 4 8 3 A 1 & U S 4 8 1 3 1 7 9 A	2-5, 9-12, 16, 19-23
Y	J P 5 0 - 1 2 2 5 0 3 A (アン ス チ ュ ・ ド ・ ル シ エ ル シ エ ・ ド ・ ラ ・ シ デ ル ル ジ ャ ・ フ ラ ン セ イ ズ ・ イ ル シ ャ ッ ド) 1 9 7 5. 0 9. 2 6 全文 & F R 2 2 7 0 2 0 1 A 1 & D E 2 5 1 0 0 8 0 A 1 & G B 1 4 6 7 1 2 3 A	2-5, 9-12, 16, 19-23
A	J P 4 1 - 0 0 5 7 2 4 B 1 (サン、オイル、カムパニ) 1 9 6 6. 0 3. 2 9 全文 (ファミリーなし)	1-17, 18-20, 21-27

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

- 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

- の日の後に公表された文献  
「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

1 6 . 0 7 . 0 3

国際調査報告の発送日

08.07.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)  
郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5  
東京都千代田区霞が関三丁目 4 番 3 号

特許庁審査官 (権限のある職員)

平塚 政宏

4 G

9 0 4 1

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 6 5



C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP 05-280373 A (株式会社東芝) 1993. 10. 26 全文 (ファミリーなし)	19, 20

## 第Ⅰ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項 (P C T 1 7 条(2) (a)) の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、従属請求の範囲であって P C T 規則6.4(a) の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

## 第Ⅱ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるところの国際調査機関は認めた。

請求の範囲 1-7、21-23に係る水素製造方法、請求の範囲 8-14、24-27に係る水素製造装置、請求の範囲 15-17に係る水素供給施設 に対し、請求の範囲 18-20は発電方法の特徴とするものであって、単一の一般的発明概念を形成するように関連していない。

1. ☒ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☐ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

請求の範囲 1-17, 21-27

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
- ☒ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。